

Docket No.: 70365-011

**PATENT**

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re Application of	:	Customer Number: 20277
	:	
Toshihiro MATSUMOTO, et al.	:	Confirmation Number:
	:	
Serial No.:	:	Group Art Unit:
	:	
Filed: February 20, 2004	:	Examiner:
	:	
For: POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL	:	

**CLAIM OF PRIORITY AND  
TRANSMITTAL OF CERTIFIED PRIORITY DOCUMENT**

Mail Stop CPD  
Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

In accordance with the provisions of 35 U.S.C. 119, Applicants hereby claim the priority of:

**Japanese Patent Application No. JP 2003-108880, filed on April 14, 2003.**

**Japanese Patent Application No. JP 2003-043004, filed on February 20, 2003**

Certified copies are submitted herewith.

Respectfully submitted,

MCDERMOTT, WILL & EMERY



Daniel Bucca, Ph.D.

Registration No. 42,368

600 13<sup>th</sup> Street, N.W.  
Washington, DC 20005-3096  
(202) 756-8000 DB:gav  
Facsimile: (202) 756-8087  
**Date: February 20, 2004**



70356-01  
Toshihiro MATSUMOTO, et al.  
February 20, 2004  
McDermott, Will & Emery

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

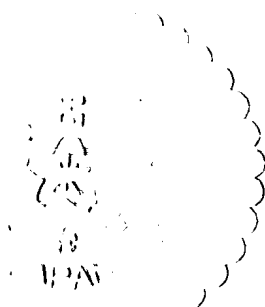
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 3 年    2 月 2 0 日  
Date of Application:

出 願 番 号                      特 願 2 0 0 3 - 0 4 3 0 0 4  
Application Number:  
[ST. 10/C] :                      [ J P 2 0 0 3 - 0 4 3 0 0 4 ]

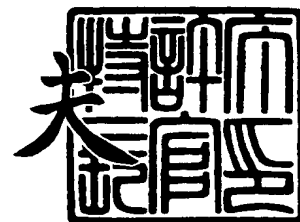
出      願      人                      松 下 電 器 産 業 株 式 会 社  
Applicant(s):



2 0 0 4 年    2 月 1 6 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号    出証特 2 0 0 4 - 3 0 0 9 5 6 9

【書類名】 特許願

【整理番号】 2033740400

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/00

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 松本 敏宏

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 富澤 猛

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 粉川 勝蔵

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 神原 輝壽

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 小林 晋

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

【氏名】 羽藤 一仁

**【発明者】**

**【住所又は居所】** 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

**【氏名】** 日下部 弘樹

**【特許出願人】**

**【識別番号】** 000005821

**【氏名又は名称】** 松下電器産業株式会社

**【代理人】**

**【識別番号】** 100072431

**【弁理士】**

**【氏名又は名称】** 石井 和郎

**【選任した代理人】**

**【識別番号】** 100117972

**【弁理士】**

**【氏名又は名称】** 河崎 眞一

**【手数料の表示】**

**【予納台帳番号】** 066936

**【納付金額】** 21,000円

**【提出物件の目録】**

**【物件名】** 明細書 1

**【物件名】** 図面 1

**【物件名】** 要約書 1

**【包括委任状番号】** 0114078

**【プルーフの要否】** 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 高分子電解質型燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 (a) 高分子電解質膜およびこれを挟むアノードおよびカソード、並びに前記カソードに酸化剤ガスを供給する酸化剤ガス用流路を有するカソード側セパレータおよび前記アノードに燃料ガスを供給する燃料ガス用流路を有するアノード側セパレータからなる少なくとも 2 種のセル A および B を含むセル積層体、並びに

(b) 前記酸化剤ガス用流路に連絡する各一对の酸化剤ガス用マニホールドおよび燃料ガス用流路に連絡する各一对の燃料ガス用マニホールドを具備し、

(c) 前記酸化剤ガス用マニホールドおよび燃料ガス用マニホールドの少なくとも一方のマニホールドは、少なくとも入口側マニホールドがセル A とセル B とで異なっており、当該異なる各入口側マニホールドからセル A およびセル B に当該ガスを並列に供給する第 1 の発電形態と、セル A およびセル B の当該ガスの出口側マニホールドを直列に接続するとともにセル B の入口側マニホールドを出口側マニホールドにしてセル A およびセル B に当該ガスを直列に供給する第 2 の発電形態をとるガスの供給・排出手段を備える高分子電解質型燃料電池。

【請求項 2】 前記酸化剤ガス用マニホールドおよび燃料ガス用マニホールドの両方のマニホールドは、少なくとも入口側マニホールドがセル A とセル B とで異なっており、当該異なる各入口側マニホールドからセル A およびセル B に酸化剤ガスおよび燃料ガスをそれぞれ並列に供給する第 1 の発電形態と、セル A およびセル B の酸化剤ガス用の出口側マニホールドおよび燃料ガス用の出口側マニホールドをそれぞれ直列に接続するとともにセル B の入口側マニホールドを出口側マニホールドにしてセル A およびセル B に酸化剤ガスおよび燃料ガスをそれぞれ直列に供給する第 2 の発電形態をとるガスの供給・排出手段を備える請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池。

【請求項 3】 (a) 高分子電解質膜およびこれを挟むアノードおよびカソード、並びに前記カソードに酸化剤ガスを供給する酸化剤ガス用流路を有するカソード側セパレータおよび前記アノードに燃料ガスを供給する燃料ガス用流路を

有するアノード側セパレータからなる少なくとも 2 種のセル A および B を含むセル積層体、

(b) 各々前記セル積層体に貫通して設けられたマニホールド孔であって、(b 1) 前記セル A の酸化剤ガス用流路に連絡する酸化剤ガス用入口側マニホールド孔、前記セル B の酸化剤ガス用流路に連絡する酸化剤ガス用入口側マニホールド孔、および前記セル A およびセル B の酸化剤ガス用流路に連絡する酸化剤ガス用出口側マニホールド孔、(b 2) 前記セル A の燃料ガス用流路に連絡する燃料ガス用入口側マニホールド孔、前記セル B の燃料ガス用流路に連絡する燃料ガス用入口側マニホールド孔、および前記セル A およびセル B の燃料ガス用流路に連絡する燃料ガス用出口側マニホールド孔を具備し、

(c) 前記セル A およびセル B の酸化剤ガス用入口側マニホールド孔および燃料ガス用マニホールド孔からセル A およびセル B に酸化剤ガスおよび燃料ガスをそれぞれ並列に供給する第 1 の発電形態と、セル A およびセル B の前記酸化剤用の出口側マニホールド孔および燃料ガスの出口側マニホールド孔をそれぞれ直列に接続するとともにセル B の入口側マニホールドを出口側マニホールドにしてセル A およびセル B に酸化剤ガスおよび燃料ガスをそれぞれ直列に供給する第 2 の発電形態をとるガスの供給・排出手段を備える高分子電解質型燃料電池。

【請求項 4】 前記酸化剤ガス用マニホールド孔および燃料ガス用マニホールド孔にそれぞれ連なるマニホールド、およびそれぞれのマニホールドの接続通路を開閉する切り替え手段を有する請求項 3 記載の高分子電解質型燃料電池。

【請求項 5】 前記発電形態に合わせて前記接続通路を開閉する切り替え手段を動作させるようにした請求項 4 記載の高分子電解質型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ポータブル電源、電気自動車用電源、家庭用コージェネレーションシステム等に使用する固体高分子電解質を用いた燃料電池に関する。

【0002】

【従来技術】

高分子電解質を用いた燃料電池は、水素を含有する燃料ガスと、空気など酸素を含有する酸化剤ガスとを、電気化学的に反応させることで、電力と熱とを同時に発生させるものである。この燃料電池は、基本的には、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜、およびその両面に形成された一对の電極、すなわちカソードおよびアノードから構成される。前記の電極は、白金族金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分として高分子電解質膜に接する触媒層、およびその外面に形成される、通気性と電子導電性を併せ持つガス拡散層からなる。

#### 【0 0 0 3】

高分子電解質膜およびこれを挟む一对の電極からなるセルは、複数個を接続して所定の電圧を得る。このため、セル間に導電性のセパレータを介在させてセルを積層してスタックとする。セパレータの両側にそれぞれ燃料ガス及び酸化ガスを供給してそれぞれのガス拡散電極に燃料ガス及び酸化ガスを供給すると、高分子電解質膜でのイオン導電と各ガス拡散電極の化学反応が進行して、一对のガス拡散電極間に電圧が発生し、集電電極の機能を持つ両端側の一对のセパレータを介して外部回路に給電する。このような発電においては、供給ガスをできるだけ均等にガス拡散電極の電極面に供給することがガス利用率を高め、発電効率と出力性能を良くする。

#### 【0 0 0 4】

電極に供給される燃料ガスおよび酸化剤ガスが外にリークしたり、二種類のガスが互いに混合したりしないように、電極の周囲には高分子電解質膜を挟んでガスシール材やガスケットが配置される。このシール材やガスケットは、電極及び高分子電解質膜と一体化してあらかじめ組み立てられる。これを、MEA（電解質膜電極接合体）と呼ぶ。MEAの外側には、これを機械的に固定するとともに、隣接したMEAを互いに電氣的に直列に接続するための導電性のセパレータが配置される。セパレータには電極面に燃料ガス及び酸化剤ガスを供給し、生成水や余剰ガスを運び去るためのガス流路を形成する溝が設けられる。

#### 【0 0 0 5】

このガス流路に反応ガスを供給するためには、ガスを供給する配管を、使用するセパレータの枚数に分岐し、その分岐先を直接セパレータの溝につなぎ込む配

管治具が必要となる。この治具をマニホールドと呼び、上記のようなガスの供給配管から直接つなぎ込むタイプを外部マニホールドと呼ぶ。このマニホールドには、構造をより簡単にした内部マニホールドと呼ぶ形式のものがある。内部マニホールドとは、ガス流路用溝を形成したセパレータに貫通した孔を設け、ガス流路の出入口をこの孔まで通し、この孔から直接反応ガスを供給するものである。

これらのMEAとセパレータを交互に重ねていき、10～200セル積層した後、集電板と絶縁板を介して端板でこれを挟み、締結ロッドで両端から固定するのが一般的な積層電池の構造である。

#### 【0006】

ガス拡散電極にガスを供給するためのセパレータのガス流路の構成は、ガス利用率のみでなく、ガス拡散電極で発生した電流の効率的な集電やガス拡散電極で発生する熱の除去にかかわることから重要である。従来、セパレータ側に形成されるガス流路は、蛇行したサーペントイン型にしたり、流路を並行する複数本構成にしたりすることが提案されている（例えば、特許文献1および2参照）。

#### 【0007】

一方、高分子電解質型燃料電池は、高分子電解質のイオン導電性を十分に発揮させて発電効率を高く維持するために、供給するガスを加湿して供給ガス中の水蒸気濃度を高める必要があり、さらに、カソード側において水が生成する。このため、ガス流路には、反応上生成される水が下流側、特に出口側に多量に含有し、液体状態となってガス流路溝を塞いでしまうおそれがある。この現象をフラッディングという。このフラッディングを防止するために、以下のような技術が提案されている（例えば、特許文献3参照）。

すなわち、セパレータのガス流路を、入口側マニホールドおよび出口側マニホールドにそれぞれつながる入口側流路溝および出口側流路溝、並びに入口側流路溝および出口側流路溝を連通する中間流路溝により構成する。そして、入口側流路溝および出口側流路溝を格子状とし、中間流路溝は複数回の折返し形状で、複数本の平行な独立流路溝、および独立流路溝の折返し部を格子状流路溝とする。

#### 【0008】

##### 【特許文献1】



特公昭 5 0 - 8 7 7 7 号公報

【特許文献 2】

特開平 7 - 2 6 3 0 0 3 号公報

【特許文献 3】

特開平 1 0 - 1 0 6 5 9 4 号公報

【0 0 0 9】

【発明が解決しようとする課題】

反応生成水によるフラッディングにより供給ガスの停滞を防止するため、過去より種々のガス流路溝が工夫され、ガス流路が格子状となるタイプと、入口から出口まで 1 本の流路とするタイプがある。格子状タイプは、フラッディングに達するような水溜まりは生じないが、全体に均一となるガス拡散性能が悪く、一部が閉塞するなど排水性能に劣る。また、1 本の流路タイプは、ガス拡散性が良いが、流れ抵抗が増えてガス供給装置側の元圧を高くする必要を生じ、補機動力が増加してシステム効率が低下する。

【0 0 1 0】

特許文献 3 の構成においては、入口側流路溝部ではガス拡散性を高め、この部分の反応を促進して全体の電気変換エネルギー効率を高めたため、入口側流路溝部に反応が集中し高分子電解質膜やガス拡散電極の触媒層の劣化が進み、耐久性に課題が残る。また、出口側流路溝部では、流路断面積を広くして排水性を確保してフラッディングを防止しているが、流路断面積が広いためガスの流れが偏在し一様でなく、流速の遅い部分では生成水が流路溝の一部を閉塞した状態を発生し、この部分にはガスが供給できなく、完全にフラッディングを防止できない。

【0 0 1 1】

燃料電池を発電システムとする場合には、供給ガスの加湿などを含めたシステム化が必要である。システムの簡素化、システム効率の向上のためには、供給ガスの加湿露点を少しでも低減して供給することが好ましい。以上のように、フラッディング現象の防止、システム効率の向上、システムの簡素化などの観点から、供給ガスは、電池温度に対して少し低めの露点で加湿し供給することが通常であった。

しかしながら、電池の高性能化のためには、高分子電解質膜のイオン伝導度を向上させる必要があり、そのためには供給ガスの加湿を相対湿度 1 0 0 % に近い湿度、または相対湿度 1 0 0 % 以上で供給することが好ましい。また、高分子電解質膜の耐久性の観点からも、供給ガスを高加湿で供給する必要がある。供給ガスの加湿を相対湿度 1 0 0 % に近い湿度で供給しようとした場合、前述のフラッディングの発生が問題となる。

#### 【 0 0 1 2 】

フラッディングを回避するためには、供給ガスのセパレータ流路部分での流速を高くして、結露した水を吹き飛ばす手法が効果的である。しかしながら、供給ガス流速を増加させるためには、高い圧力でガスを供給することが必要となり、システム化した場合のガス供給ブロワまたはコンプレッサ等の補機動力を極端に増加させねばならないため、システム効率の悪化を招く。また、フラッディング現象がアノード側で発生すると燃料ガスの欠乏を招き、これは電池にとって致命傷となってしまう。これは、燃料ガスが不足している状態で負荷電流が強制的に取られると、燃料のない状態で電子とプロトンを作るために、アノード側の触媒を担持しているカーボンが雰囲気中の水と反応してしまうことによる。その結果、触媒層のカーボンの溶出によりアノード側の触媒層が破壊されるのである。

#### 【 0 0 1 3 】

積層燃料電池を搭載したシステムでは、商品性を考慮すると、電池を定格出力条件で運転するだけでなく、電力需要に応じて出力を抑えた低負荷運転が必要不可欠である。低負荷運転では効率を維持するために、燃料ガスや酸化剤ガスの利用率を定格運転と同じ条件にする必要がある。すなわち、定格運転時に対して、例えば負荷を 1 / 2 に抑えた場合、燃料ガスや酸化剤ガスの流量も 1 / 2 程度に低減しなければ、余分な燃料ガスや酸化剤ガスを使用することになるため発電効率が低下する。しかし、ガスの利用率を一定にして低負荷運転を行うと、ガス流路内のガス流速が低下し、凝縮水や生成水をセパレータ外に排出できず、上述のようなフラッディング現象が発生し、電池性能が低下したり、不安定になったりするという問題がある。

#### 【 0 0 1 4 】

本発明は、以上の課題を解決し、低負荷運転時においても定格運転時と同じガス流速を確保できる、信頼性の高い燃料電池を提供することを目的とする。

#### 【0 0 1 5】

##### 【課題を解決するための手段】

このような課題を解決するために本発明の高分子電解質型燃料電池は、

(1) 高分子電解質膜およびこれを挟むアノードおよびカソード、並びに前記カソードに酸化剤ガスを供給する酸化剤ガス用流路を有するカソード側セパレータおよび前記アノードに燃料ガスを供給する燃料ガス用流路を有するアノード側セパレータからなる少なくとも2種のセルAおよびBを含むセル積層体、

(2) 前記酸化剤ガス用流路に連絡する各一对の酸化剤ガス用マニホールドおよび燃料ガス用流路に連絡する各一对の燃料ガス用マニホールドを具備し、

(3) 酸化剤ガスおよび燃料ガスの少なくとも一方は、セルAおよびセルBに並列に供給する第1の発電形態と、セルAおよびセルBに直列に供給する第2の発電形態をとるガスの供給・排出手段を備える。

#### 【0 0 1 6】

さらに詳しくは、前記酸化剤ガス用マニホールドおよび燃料ガス用マニホールドの少なくとも一方のマニホールドは、少なくとも入口側マニホールドがセルAとセルBとで異なっており、当該異なる各入口側マニホールドからセルAおよびセルBに当該ガスを並列に供給する第1の発電形態と、セルAおよびセルBの当該ガスの出口側マニホールドを直列に接続するとともにセルBの入口側マニホールドを出口側マニホールドにしてセルAおよびセルBに当該ガスを直列に供給する第2の発電形態をとるガスの供給・排出手段を備える。

これによって、負荷変動時にも全てのガス流路において同一のガス流速を保つことができ、低負荷運転時の電池性能の低下あるいは不安定現象を回避できる。

#### 【0 0 1 7】

##### 【発明の実施の形態】

本発明の高分子電解質型燃料電池は、

(a) 高分子電解質膜およびこれを挟むアノードおよびカソード、並びに前記カソードに酸化剤ガスを供給する酸化剤ガス用流路を有するカソード側セパレー

タおよび前記アノードに燃料ガスを供給する燃料ガス用流路を有するアノード側セパレータからなる少なくとも 2 種のセル A および B を含むセル積層体、並びに

(b) 前記酸化剤ガス用流路に連絡する各一对の酸化剤ガス用マニホールドおよび燃料ガス用流路に連絡する各一对の燃料ガス用マニホールドを具備し、

(c) 前記酸化剤ガス用マニホールドおよび燃料ガス用マニホールドの少なくとも一方のマニホールドは、少なくとも入口側マニホールドがセル A とセル B とで異なっており、当該異なる各入口側マニホールドからセル A およびセル B に当該ガスを並列に供給する第 1 の発電形態と、セル A およびセル B の当該ガスの出口側マニホールドを直列に接続するとともにセル B の入口側マニホールドを出口側マニホールドにしてセル A およびセル B に当該ガスを直列に供給する第 2 の発電形態をとるガスの供給・排出手段を備える。

#### 【0018】

本発明の好ましい形態において、前記酸化剤ガス用マニホールドおよび燃料ガス用マニホールドの両方のマニホールドは、少なくとも入口側マニホールドがセル A とセル B とで異なっており、当該異なる入口側マニホールドからセル A およびセル B に酸化剤ガスおよび燃料ガスを並列に供給する第 1 の発電形態と、セル A およびセル B の酸化剤ガス用の出口側マニホールドおよび燃料ガス用の出口側マニホールドをそれぞれ直列に接続してセル A およびセル B に酸化剤ガスおよび燃料ガスをそれぞれ直列に供給する第 2 の発電形態をとるガスの供給・排出手段を備える。

#### 【0019】

本発明のさらに好ましい形態における高分子電解質型燃料電池は、

(a) 高分子電解質膜およびこれを挟むアノードおよびカソード、並びに前記カソードに酸化剤ガスを供給する酸化剤ガス用流路を有するカソード側セパレータおよび前記アノードに燃料ガスを供給する燃料ガス用流路を有するアノード側セパレータからなる少なくとも 2 種のセル A および B を含むセル積層体、

(b) 各々前記セル積層体に貫通して設けられたマニホールド孔であって、  
b 1) 前記セル A の酸化剤ガス用流路に連絡する酸化剤ガス用入口側マニホールド孔、前記セル B の酸化剤ガス用流路に連絡する酸化剤ガス用入口側マニホールド孔、

ド孔、および前記セル A およびセル B の酸化剤ガス用流路に連絡する酸化剤ガス用出口側マニホールド孔、(b2) 前記セル A の燃料ガス用流路に連絡する燃料ガス用入口側マニホールド孔、前記セル B の燃料ガス用流路に連絡する燃料ガス用入口側マニホールド孔、および前記セル A およびセル B の燃料ガス用流路に連絡する燃料ガス用出口側マニホールド孔を具備し、

(c) 前記セル A およびセル B の酸化剤ガス用入口側マニホールド孔および燃料ガス用マニホールド孔からセル A およびセル B に酸化剤ガスおよび燃料ガスをそれぞれ並列に供給する第 1 の発電形態と、セル A およびセル B の前記酸化剤用の出口側マニホールド孔および燃料ガスの出口側マニホールド孔をそれぞれ直列に接続してセル A およびセル B に酸化剤ガスおよび燃料ガスをそれぞれ直列に供給する第 2 の発電形態をとるガスの供給・排出手段を備える。

#### 【0020】

前記酸化剤ガス用マニホールド孔および燃料ガス用マニホールド孔にそれぞれ連なるマニホールド、およびそれぞれのマニホールドの接続通路を開閉する切り替え手段を有することが好ましい。

また、前記発電形態に合わせて前記接続通路を開閉する切り替え手段を動作させるように構成されることが好ましい。

#### 【0021】

本発明は、セパレータに設けられる一対のマニホールド孔のうち入口側マニホールド孔を少なくとも 2 個とし、マニホールド孔へのガスの供給を適宜切り替えることによって、低負荷運転時の電池性能の低下あるいは不安定現象を回避する方法を見いだしたことに基づいている。

すなわち、高分子電解質膜およびこれを挟むアノードおよびカソードからなる電解質膜電極接合体 (MEA) を挟むセパレータ対を少なくとも 2 種準備する。第 1 のセパレータ対に挟まれたセル A と第 2 のセパレータ対に挟まれたセル B とを含むセル積層体を構成し、セル A には第 1 の入口側マニホールド孔からガスを供給し、セル B には第 2 のマニホールド孔からガスを供給する。これによって、セル A とセル B にはガスを並列に供給することができる。また、セル A とセル B の出口側マニホールド孔を直列に連結し、第 1 の入口側マニホールド孔からガス

を供給すれば、ガスはセル A とセル B を直列に流れ、第 2 の入口側マニホールド孔から排出される。

このようにして、酸化剤ガスおよび燃料ガスの一方、好ましくは両方をセル A とセル B とに、負荷に応じて並列または直列に供給することができ、ガス流路におけるガス流速を負荷にかかわらず一定にすることができる。これによって、低負荷運転時に電池性能が低下したり不安定現象を生じたりすることを回避することができる。

### 【 0 0 2 2 】

従来の燃料電池セパレータの構造は、燃料ガス及び酸化剤ガスの各々のガスは、一つのガス入口側マニホールドからセパレータのガス流路にガスを供給し、一つのガス出口側マニホールドを介して排出される構成であった。燃料電池発電システムの商品性を高めるためには、電力需要に応じた燃料電池の負荷を、発電効率を低下させることなく変動させることが望まれる。そのためには、定格出力に対して負荷を増大させる場合には、それに見合った流量に燃料ガス及び酸化剤ガスの流量を増大させ、定格出力に対して負荷を減少させる場合には、それに見合った流量に燃料ガス及び酸化剤ガスの流量を減少させて運転できることが好ましい。

### 【 0 0 2 3 】

通常、燃料電池に用いられる導電性セパレータに設けられたガス流路は、定格出力において最も適したガス流速となるように設計されている。従って、電力負荷を増大させた場合には、ガス流量の増大に伴ってガス流路のガス流速が増大し、電力負荷を減少する場合には、ガス流量の減少に伴ってガス流路のガス流速が減少する。ガス流路のガス流速が増大した場合には、供給ガスの圧力損失が増大するため、補機動力の増大により発電効率が若干は低下するものの、ガス流路のガス流速が増大するため、セパレータガス流路内の結露水や生成水はむしろ効率よく除去可能となり、フラッディング現象が発生することはない。しかしながら、電力負荷を減少させる場合には、ガス流量の減少に伴ってガス流路のガス流速も減少する。ガス流路のガス流速が減少した場合には、流速の減少度合いによって、セパレータのガス流路内の結露水や生成水を効率よく除去することが困難に

なり、フラッディング現象が発生する。このとき、電力負荷を減少したにもかかわらず、供給ガス流量を減少させなければ、発電出力に対する補機動力の割合が相対的に大きくなり、発電システム全体での発電効率が低下する。

#### 【0024】

本発明は、上記のように、異なる入口側マニホールド孔をもつセルへのガスの供給をマニホールドを介して直列および並列に切替することで、特に低負荷運転時にもフラッディングが起こらない燃料電池を実現するものである。例えば、最高負荷発電出力と最低負荷発電出力の比を2対1とする場合、ガス入口側マニホールドを2個設け、第1のマニホールドにつながっているガス流路のセルAと第2のマニホールドにつながっているガス流路のセルBを交互に積層する。そして、高負荷発電時には第1および第2のガス入口側マニホールドに並列にガスを供給する。また、最低負荷運転時には第1のガス入口側マニホールドからガスを供給し、第2のガス入口側マニホールドは出口として使用し、高負荷発電時に出口であったマニホールドをセパレータ外で配管を用いて閉じることにより、セルを直列につなぎガスを供給する。これによって、負荷変動時にも全てのガス流路において同一のガス流速を保つことができる。

#### 【0025】

ガス流路を直列に接続する場合、各ガス流路の接続は独立したマニホールド孔をセパレータ外部で配管を用いて接続することによって、中間のマニホールド孔において結露した凝縮水をセパレータ外部に排出することが可能となり、下流の流路に凝縮水が供給されないため、安定した運転が可能である。

さらに、マニホールド孔の接続部分にミストトラップを挿入することによって、凝縮水の排出を確実に行うことが可能となる。このとき、マニホールドを介して直列になるセルは隣り合って配置されているのが好ましい。

これらにより、特に低負荷運転時にもフラッディングが起こらない燃料電池を実現することができる。

#### 【0026】

##### 実施の形態1

図1及び図2は、セルAを構成するためのカソード側セパレータ10A及びア

ノード側セパレータ 20A を示す。セパレータ 10A は、酸化剤ガスのマニホールド孔 11A、13A および 15A、並びに燃料ガスのマニホールド孔 12A、14A および 16A を有し、カソードに向き合う面にマニホールド孔 11A と 15A を連絡するガス流路 17A を有する。一方、セパレータ 20A は、燃料ガスのマニホールド孔 22A、24A および 26A、並びに酸化剤ガスのマニホールド孔 21A、23A および 25A を有し、アノードに向き合う面にマニホールド孔 22A と 26A を連絡するガス流路 28A を有する。

#### 【0027】

図 3 及び図 4 は、セル B を構成するためのカソード側セパレータ 10B 及びアノード側セパレータ 20B を示す。セパレータ 10B は、酸化剤ガスのマニホールド孔 11B、13B および 15B、並びに燃料ガスのマニホールド孔 12B、14B および 16B を有し、カソードに向き合う面にマニホールド孔 13B と 15B を連絡するガス流路 17B を有する。一方、セパレータ 20B は、燃料ガスのマニホールド孔 22B、24B および 26B、並びに酸化剤ガスのマニホールド孔 21B、23B および 25B を有し、アノードに向き合う面にマニホールド孔 24B と 26B を連絡するガス流路 28B を有する。

#### 【0028】

上記のセパレータに組み合わされる電解質膜電極接合体 (MEA) は、セパレータと同じサイズの高分子電解質膜、前記電解質膜を挟む一対のガス拡散電極、すなわちカソードおよびアノード、並びに電極の周縁部からはみ出た部分の電解質膜を挟む一対のガスケットから構成される。

この MEA をセパレータ 10A と 20A で挟んでセル A を構成し、同様に MEA をセパレータ 10B と 20B で挟んでセル B を構成する。

上のセル A とセル B とを交互に積層してセル積層体を構成する。

#### 【0029】

図 9 は上記のセル積層体を用いた燃料電池を示す。セル積層体 30 は、その両端に集電板 31 および絶縁板 32 を介して端板 33 で挟み、ボルト (図示しない) により締結されている。一方の端板には、セパレータの酸化剤ガス用マニホールド孔 11A、11B、21A および 21B に連通するマニホールド 1、酸化剤



ガス用マニホールド孔 13 A、13 B、23 A および 23 B に連通するマニホールド 3 L、燃料ガス用マニホールド孔 12 A、12 B、22 A、および 22 B に連通するマニホールド 2、並びに燃料ガス用マニホールド孔 14 A、14 B、24 A、および 24 B に連通するマニホールド 4 L が取り付けられている。他方の端板には、酸化剤ガス用マニホールド孔 13 A、13 B、23 A および 23 B に連通するマニホールド 3 R、燃料ガス用マニホールド孔 14 A、14 B、24 A、および 24 B に連通するマニホールド 4 R、酸化剤ガス用マニホールド孔 15 A、15 B、25 A および 25 B に連通するマニホールド 5、並びに燃料ガス用マニホールド孔 16 A、16 B、26 A、および 26 B に連通するマニホールド 6 が取り付けられている。

### 【0030】

この燃料電池を運転する際の酸化剤ガスおよび燃料ガスの供給方法を説明する。

まず、定格で運転するときは、酸化剤ガス、燃料ガスともにセル A および B に並列に供給して発電させる。すなわち、マニホールド 3 R を閉じ、マニホールド 1 および 3 L に酸化剤ガスを均等に供給する。これによってセパレータ 10 A には、図 1 に示す矢印のように、酸化剤ガスは、マニホールド孔 11 A からガス流路 17 A を流れ、マニホールド孔 15 A から排出される。同様に、セパレータ 10 B には、図 3 に示す矢印のように、酸化剤ガスは、マニホールド孔 13 B からガス流路 17 B を流れ、マニホールド孔 15 B から排出される。

一方、マニホールド 4 R を閉じ、マニホールド 2 および 4 L に燃料ガスを均等に供給する。これによってセパレータ 20 A には、図 2 に示す矢印のように、燃料ガスは、マニホールド孔 22 A からガス流路 28 A を流れ、マニホールド孔 26 A から排出される。同様に、セパレータ 20 B には、図 4 に示す矢印のように、燃料ガスは、マニホールド孔 24 B からガス流路 28 B を流れ、マニホールド孔 26 B から排出される。

### 【0031】

上記のようにして、セル A および B のカソードおよびアノードに酸化剤ガスおよび燃料ガスがそれぞれ並列に供給されて発電する。

**【 0 0 3 2 】**

次に、定格の 1 / 2 の負荷で運転するときは、マニホールド 3 L、4 L、5、および 6 を閉じ、マニホールド 1 に酸化剤ガスを供給し、マニホールド 2 に燃料ガスを供給する。酸化剤ガスおよび燃料ガスは、以下に説明するように、それぞれセル A と B を直列に流れ、マニホールド 3 R および 4 R から排出される。

マニホールド 1 に供給される酸化剤ガスは、図 5 の矢印に示すように、セパレータ 1 0 A のマニホールド孔 1 1 A からガス流路 1 7 A を流れ、マニホールド孔 1 5 A に排出される。次いで、図 7 の矢印に示すように、セパレータ 1 0 B のマニホールド孔 1 5 B に入り、ガス流路 1 7 B を流れ、マニホールド孔 1 3 B から排出される。

**【 0 0 3 3 】**

同様に、マニホールド 2 に供給される燃料ガスは、図 6 の矢印に示すように、セパレータ 2 0 A のマニホールド孔 2 2 A からガス流路 2 8 A を流れ、マニホールド孔 2 6 A に排出される。次いで、図 8 の矢印に示すように、セパレータ 2 0 B のマニホールド孔 2 6 B に入り、ガス流路 2 8 B を流れ、マニホールド孔 2 4 B から排出される。

このように、酸化剤ガスおよび燃料ガスは、それぞれセル A および B に直列に流れる。

**【 0 0 3 4 】****実施の形態 2**

本実施の形態における燃料電池の全体構成を図 1 0 に示す。実施の形態 1 と異なるところは、各マニホールドの配管にバルブを設けたことである。酸化剤ガスの入口側マニホールド 1 および 3 L はそれぞれバルブ V 2 および V 1 を介して 1 つの酸化剤ガス供給パイプに連結している。酸化剤ガスの入口側マニホールド 3 R にはバルブ V 5 を、出口側マニホールド 5 にはバルブ V 8 をそれぞれ設けている。燃料ガスの入口側マニホールド 2 および 4 L はそれぞれバルブ V 4 および V 3 を介して 1 つの燃料ガス供給パイプに連結し、燃料ガスの入口側マニホールド 4 R にはバルブ V 6 を、出口側マニホールド 6 にはバルブ V 7 をそれぞれ設けている。

**【0 0 3 5】**

この構成によれば、セル A とセル B に酸化剤ガスを並列に供給するときは、バルブ V 1、V 2 および V 8 を開くとともにバルブ V 5 を閉じ、マニホールド 1 および 3 L からそれぞれ酸化剤ガスを供給し、マニホールド 5 から排出する。同様に、バルブ V 3、V 4 および V 7 を開くとともにバルブ V 6 を閉じ、燃料ガスをマニホールド 2 および 4 L から供給し、マニホールド 6 から排出する。

一方、セル A とセル B に酸化剤ガスを直列に供給するときは、バルブ V 2 および V 5 を開くとともにバルブ V 7 および V 8 を閉じ、酸化剤ガスをマニホールド 1 から供給し、マニホールド 3 R から排出する。また、バルブ V 4 および V 6 を開くとともにバルブ V 3 および V 7 を閉じ、燃料ガスをマニホールド 2 から供給し、マニホールド 4 R から排出する。

**【0 0 3 6】**

上記の実施の形態においては、各セパレータはそれぞれ単一のものを用いたが、一方の面がカソード側セパレータとして機能し、その裏面がアノード側セパレータとして機能するセパレータとすることもできる。例えばセル A とセル B とを隣接して配列するときは、セル A のカソード側セパレータの裏面をセル B のアノード側セパレータとする。また、上記の実施の形態においては、説明の都合上セルを冷却するための冷却水のマニホールド孔を省いている。冷却部は、通常カソード側セパレータとアノード側セパレータの向き合う面に冷却水の流路を形成することにより構成される。この冷却部は、各セル毎または 2 ～ 3 セル毎に設けられる。

**【0 0 3 7】****【実施例】**

以下、本発明の実施例を説明する。

**《実施例 1》**

アセチレンブラック系カーボン粉末に、平均粒径約 3 0 Å の白金粒子を 2 5 重量%担持した。これをカソードの触媒とした。また、アセチレンブラック系カーボン粉末に、平均粒径約 3 0 Å の白金-ルテニウム合金粒子を 2 5 重量%担持した。これをアノードの触媒とした。これらの触媒粉末のイソプロパノール分散液

に、パーフルオロカーボンスルホン酸粉末のエチルアルコール分散液を混合し、ペースト状にした。これらのペーストを原料としてスクリーン印刷法を用いて、厚み  $250\text{ }\mu\text{m}$  のカーボン不織布の一方の面に塗布、乾燥してカソード触媒層およびアノード触媒層をそれぞれ形成した。得られた触媒層中に含まれる白金量は  $0.3\text{ mg/cm}^2$ 、パーフルオロカーボンスルホン酸の量は  $1.2\text{ mg/cm}^2$  とした。

#### 【0038】

これらの触媒層を有するカーボン不織布からなる電極は、触媒材料以外の構成はカソード・アノード負極共に同一構成である。これらの電極を、電極より一回り大きい面積を有する水素イオン伝導性高分子電解質膜の中心部の両面に、印刷した触媒層が電解質膜側に接するようにホットプレスによって接合した。さらに厚さ  $250\text{ }\mu\text{m}$  のエラストマー（デュポン社のバイトンAP、硬度500）のシートを所定の大きさに切り抜いたガスケットを、前述の電極の外周部において露出する電解質膜の両面に配置し、ホットプレスによって接合一体化させた、こうしてMEAを作製した。水素イオン伝導性高分子電解質として、厚み  $30\text{ }\mu\text{m}$  のパーフルオロカーボンスルホン酸の薄膜を用いた。

#### 【0039】

本実施例では、図1～図4に示すセパレータ10A、10B、20Aおよび20Bを用いた。これらのセパレータは、厚さ3mmの等方性黒鉛板に機械加工によってガス流路及びマニホールド孔を形成した。ガス流路の溝幅は2mm、深さは1mm、ガス流路間のリブの幅は1mmとし、ガス流路はいずれも1本パスとした。

上記のMEAにカソード側セパレータ10Aとアノード側セパレータ20Aを組み合わせたセルAと、MEAにカソード側セパレータ10Bとアノード側セパレータ20Bを組み合わせたセルBとを交互に積層して50セルのセル積層体を構成した。セル積層体は、金メッキした銅板からなる集電板とポリフェニレンサルファイド製の絶縁板を介して、ステンレス鋼製の端板で挟み、両端板は締結ロッドで締結した。締結圧は電極の面積当たり  $10\text{ kgf/cm}^2$  とした。また、図で示したセパレータの上部が上となるよう積層電池を構成した。

## 【0040】

次に、このセル積層体を用いた電池の実際の運転方法について説明する。先の実施の形態で説明したように、電池を定格条件で運転する際には、酸化剤ガス、燃料ガスともにセルAとセルBに並列に供給した。また、定格に対して50%以下の低負荷運転では、酸化剤および燃料ガスをセルAとセルBにそれぞれ直列に供給した。この電池の定格運転条件は、燃料利用率75%、酸素利用率40%、電流密度 $0.3\text{ A/cm}^2$ である。

## 【0041】

この燃料電池を $70^\circ\text{C}$ に保持し、アノードに $70^\circ\text{C}$ の露点となるよう加湿・加温した水素主体のガス（80%水素ガス／20%二酸化炭素／10ppm一酸化炭素）を、カソードに $70^\circ\text{C}$ の露点となるよう加湿・加温した空気をそれぞれ供給した。この電池を定格の25%の低負荷となる電流密度 $0.075\text{ A/cm}^2$ から定格負荷となる $0.3\text{ A/cm}^2$ まで電流密度を変化させて電流－電圧特性を評価した。ただし、試験中の利用率は定格条件と同等とした。その結果を図11に示す。図11には比較のため、従来の燃料電池、すなわちセルAのみを積層した電池の特性も併記した。本実施例では、電流密度 $0.15\text{ A/cm}^2$ 以下を直列流路、 $0.15\text{ A/cm}^2$ 以上を並列流路に切り替えて試験を行った。図11より、本実施例による燃料電池では、従来の電池ではガス流速の低下によってフラッディングが発生し運転が困難となっていた $0.075\text{ A/cm}^2$ 付近においてもフラッディングを発生せず、安定して運転できていることがわかる。本実施例では、2種のセルを用いたが、マニホールドを増やすことでさらに直列接続するセルの種類を増やすことも可能である。

## 【0042】

## 《実施例2》

本実施例では、実施の形態2のように配管にバルブを構成した。バルブの開閉により、ガスの供給を切り替えて、実施例1と同様の試験を行った。その結果、実施例1と同等の性能が得られた。

## 【0043】

## 【発明の効果】

以上のように本発明によれば、少なくとも 2 種のセルに反応ガスを直列および並列に切り替え供給して運転することが可能となり、低負荷運転時のフラッシュングによる電池性能の低下を解消し、かつ高負荷時の圧力損失の上昇を抑制し、高効率で安定した運転を可能とする。また、燃料ガスと酸化ガスを導くそれぞれの入口側マニホールドおよび出口側マニホールドの接続通路を開閉する切り替え手段を設けることにより、簡便に切り替えが可能となる。燃料電池の発電量に合わせて前記通路を開閉する切り替え手段を動作させる構成にすることにより、簡単な制御で高効率かつ安定した電池運転が可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の実施の形態 1 の燃料電池におけるセル A のカソード側セパレータの正面図である。

【図 2】

本発明の実施の形態 1 の燃料電池におけるセル A のアノード側セパレータの正面図である。

【図 3】

本発明の実施の形態 1 の燃料電池におけるセル B のカソード側セパレータの正面図である。

【図 4】

本発明の実施の形態 1 の燃料電池におけるセル B のアノード側セパレータの正面図である。

【図 5】

本発明の実施の形態 1 の燃料電池においてセル A および B に反応ガスが直列に供給される際のセル A の酸化剤ガスの流れを示すカソード側セパレータの正面図である。

【図 6】

本発明の実施の形態 1 の燃料電池においてセル A および B に反応ガスが直列に供給される際のセル A の燃料ガスの流れを示すアノード側セパレータの正面図である。

**【図 7】**

本発明の実施の形態 1 の燃料電池においてセル A および B に反応ガスが直列に供給される際のセル B の酸化剤ガスの流れを示すカソード側セパレータの正面図である。

**【図 8】**

本発明の実施の形態 1 の燃料電池においてセル A および B に反応ガスが直列に供給される際のセル B の燃料ガスの流れを示すアノード側セパレータの正面図である。

**【図 9】**

本発明の実施の形態 1 の燃料電池の全体構成を示す斜視図である。

**【図 1 0】**

本発明の実施の形態 2 の燃料電池の全体構成を示す斜視図である。

**【図 1 1】**

本発明の実施例 1 の燃料電池の連続発電試験における電圧の変化を示した図である。

**【符号の説明】**

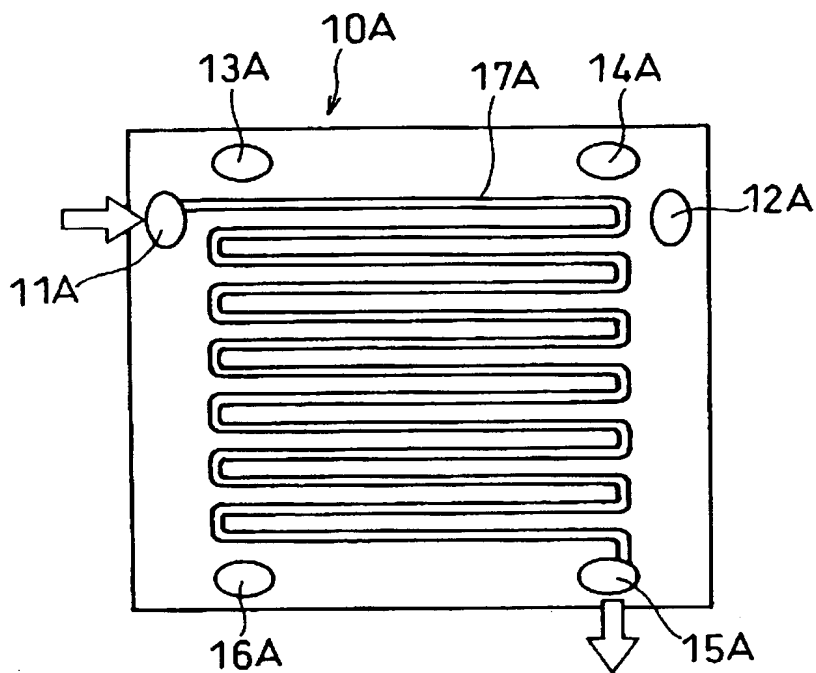
- 1、3 L、3 R、5 酸化剤ガスのマニホールド
- 2、4 L、4 R、6 燃料ガスのマニホールド
- 1 0 A、1 0 B カソード側セパレータ
- 2 0 A、2 0 B アノード側セパレータ
- 1 1 A、1 1 B、2 1 A、2 1 B 酸化剤ガスの入口側マニホールド孔
- 1 3 A、1 3 B、2 3 A、2 3 B 酸化剤ガスの入口側マニホールド孔
- 1 2 A、1 2 B、2 2 A、2 2 B 燃料ガスの入口側マニホールド孔
- 1 4 A、1 4 B、2 4 A、2 4 B 燃料ガスの入口側マニホールド孔
- 1 5 A、1 5 B、2 5 A、2 5 B 酸化剤ガスの出口側マニホールド孔
- 1 6 A、1 6 B、2 6 A、2 6 B 酸化剤ガスの出口側マニホールド孔
- 3 0 セル積層体
- 3 1 集電板
- 3 2 絶縁板

3 3 端板

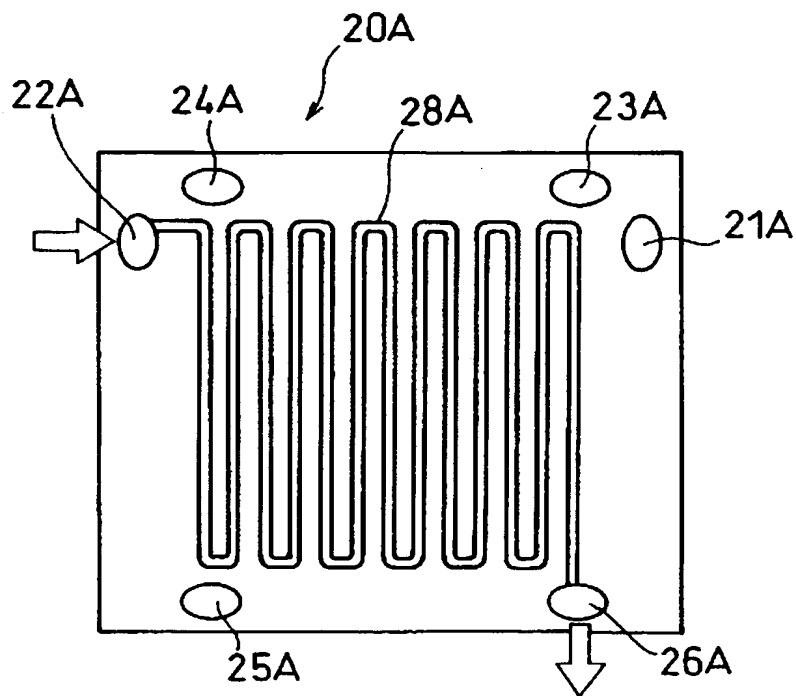


【書類名】 図面

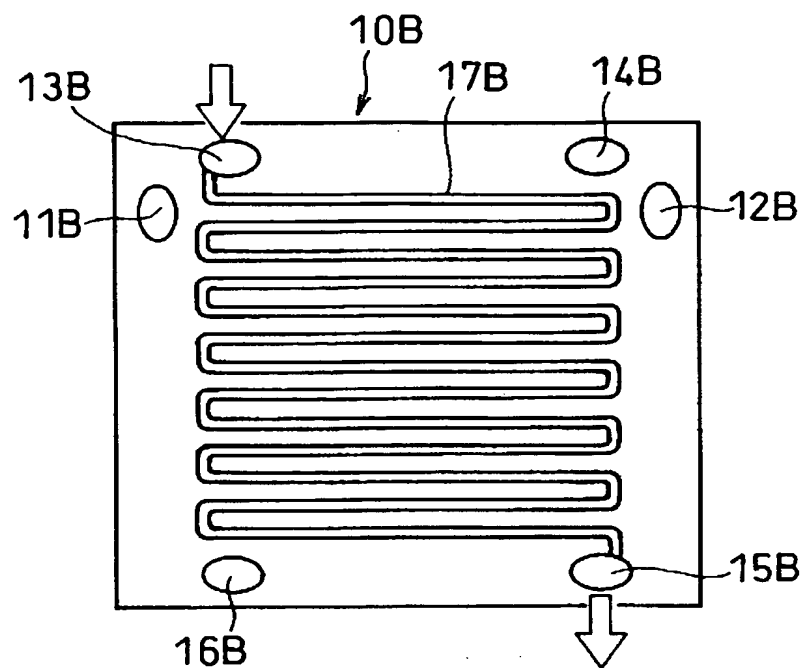
【図 1】



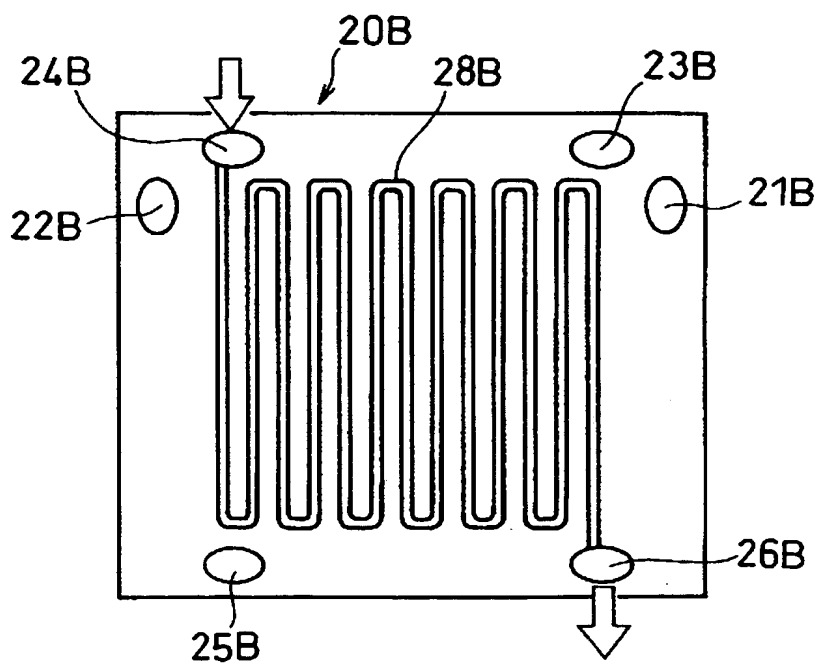
【図 2】



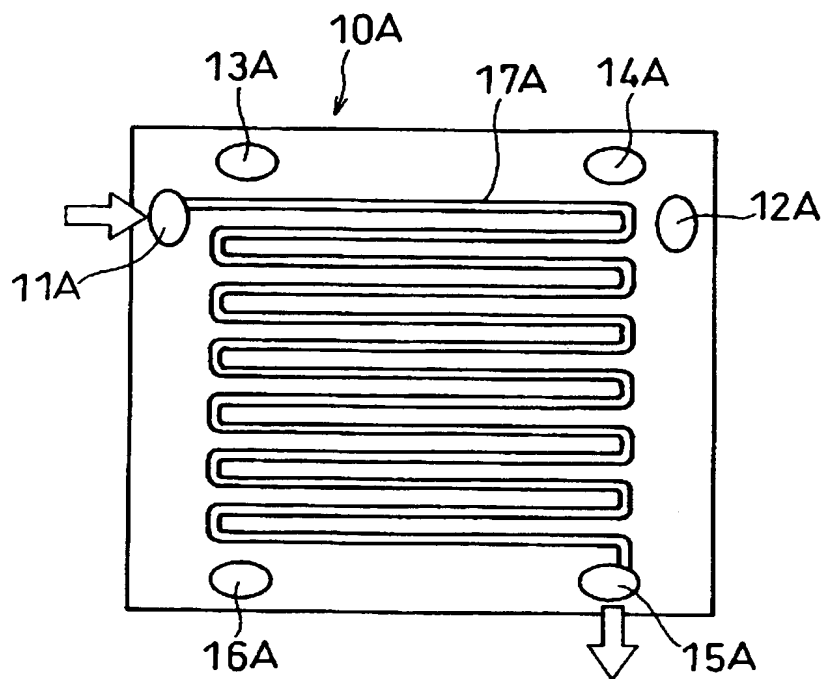
【図 3】



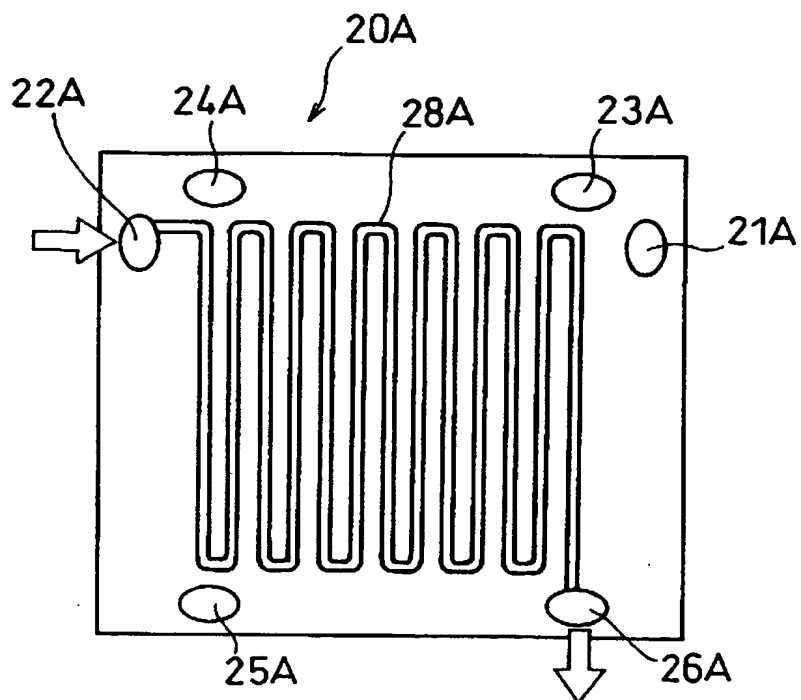
【図 4】



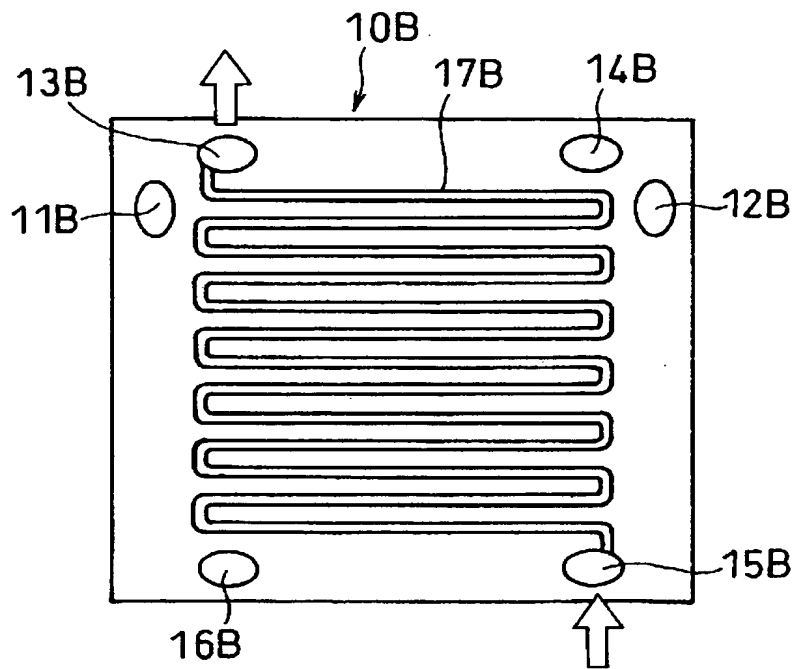
【図 5】



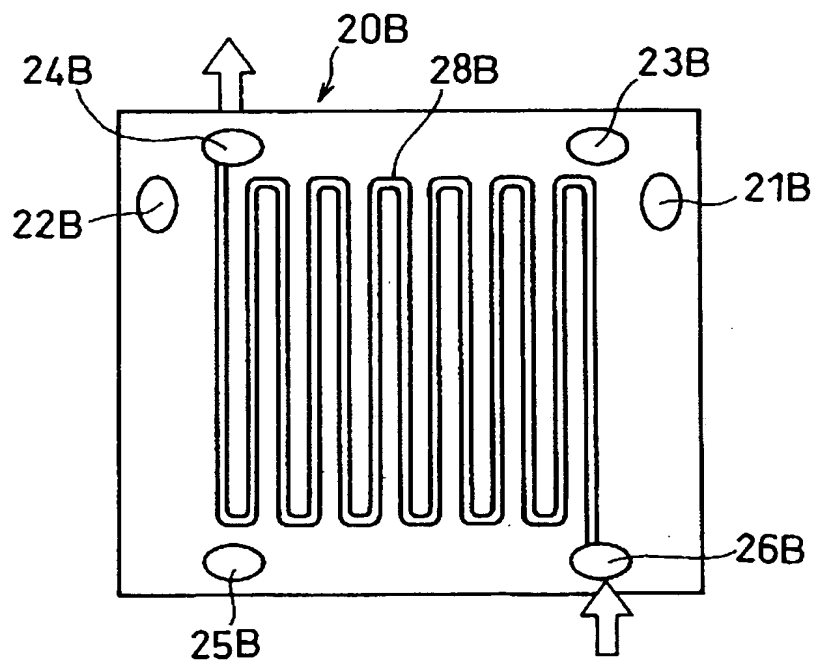
【図 6】



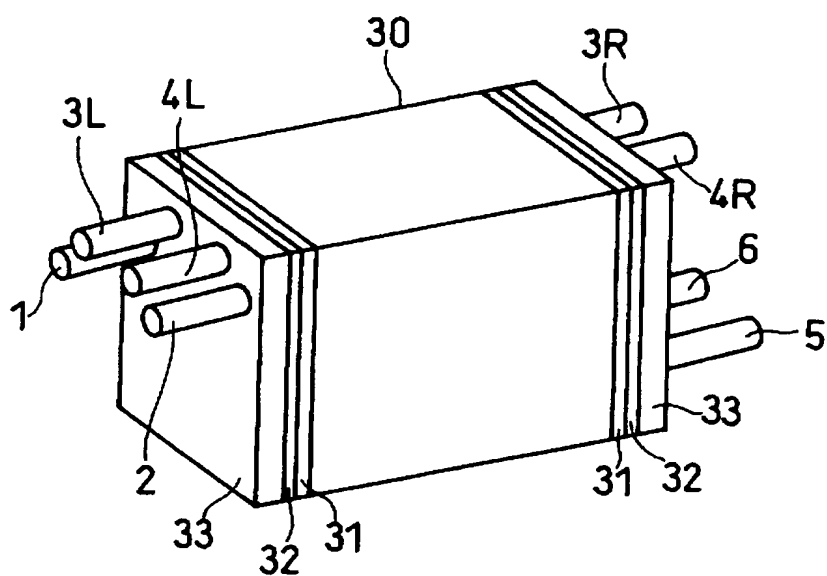
【図 7】



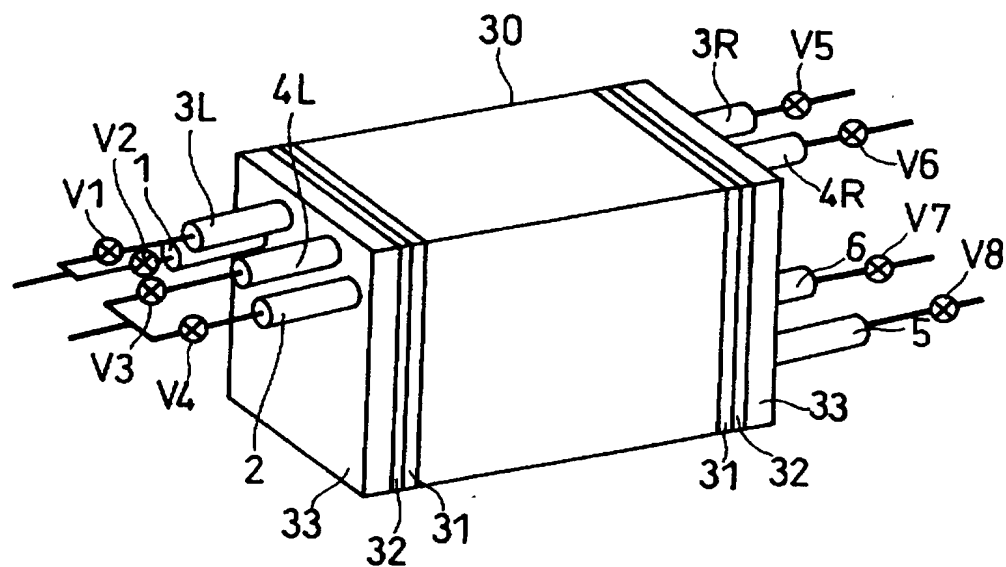
【図 8】



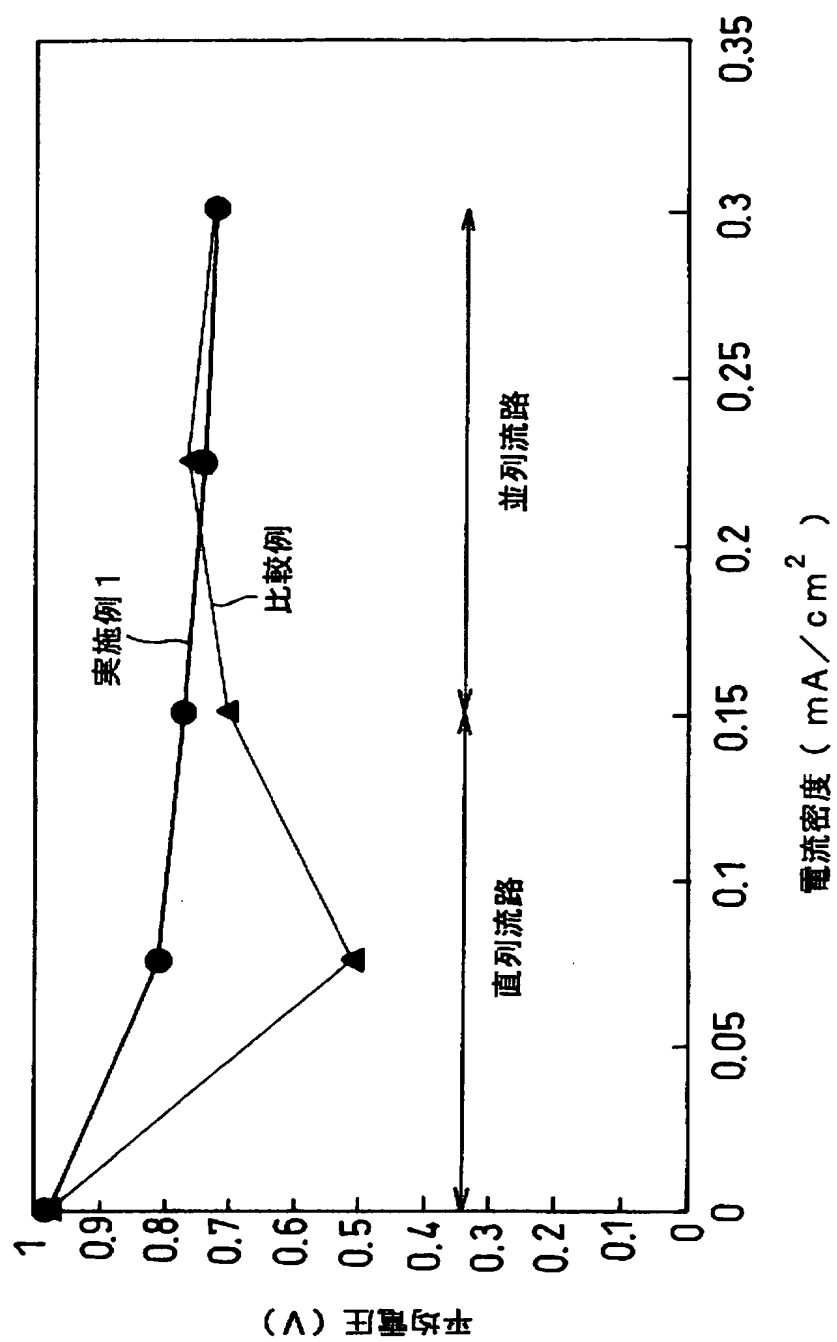
【図 9】



【図 10】



【図 11】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 低負荷運転時においても定格運転時と同じガス流速を確保し、凝縮水や生成水によるガス流路の閉塞のない、信頼性の高い燃料電池を提供すること。

【解決手段】 電解質膜電極接合体を挟む一対のセパレータからなる少なくとも2種のセルAおよびBを含むセル積層体、各セパレータのガス流路に連絡する一対のマニホールドを具備し、酸化剤ガスおよび燃料ガスの少なくとも一方は、セルAおよびセルBに並列に供給する第1の発電形態と、セルAおよびセルBに直列に供給する第2の発電形態をとるガスの供給・排出手段を備える。前記マニホールドは、入口側マニホールドがセルAとBとで異なり、第1の発電形態では、入口側マニホールドからセルAとBにガスを並列に供給する。第2の発電形態では、セルAとBの出口側マニホールドを直列に接続するとともにセルBの入口側マニホールドを出口側マニホールドにし、セルAとBにガスを直列に供給する。

【選択図】 図1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 3 - 0 4 3 0 0 4
受付番号	5 0 3 0 0 2 7 4 8 4 1
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0 0 9 4
作成日	平成 1 5 年 2 月 2 1 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】	平成15年 2月20日
-------	-------------

次頁無



特願 2 0 0 3 - 0 4 3 0 0 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 5 8 2 1 ]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 8 日
[変更理由]	新規登録
住 所	大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地
氏 名	松下電器産業株式会社